

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2002 年 11 月 28 日 (28.11.2002)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 02/094529 A1

- (51) 国際特許分類⁷: B29B 9/12, 11/12, C08L 101/00, C08K 3/00, 5/521, C08J 3/12
- (21) 国際出願番号: PCT/JP02/04911
- (22) 国際出願日: 2002 年 5 月 21 日 (21.05.2002)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2001-156063 2001 年 5 月 24 日 (24.05.2001) JP
特願 2001-318757 2001 年 10 月 16 日 (16.10.2001) JP
特願 2001-318759 2001 年 10 月 16 日 (16.10.2001) JP
特願 2001-318762 2001 年 10 月 16 日 (16.10.2001) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 東レ株式会社 (TORAY INDUSTRIES, INC.) [JP/JP]; 〒103-8666 東京都中央区日本橋室町 2 丁目 2 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 梅津 秀之 (UMETSU, Hideyuki) [JP/JP]; 〒450-0818 愛知県名古屋市緑区鳴海町大清水 6 9 番 1 9 6 9 号 Aichi (JP). 篠田 文恵 (SHINODA, Fumie) [JP/JP]; 〒467-0843 愛知県名古屋市瑞穂区土市町 1 丁目 6 番 1 号 BE BOX 3 0 6 号 Aichi (JP). 真壁 芳樹 (MAKABE, Yoshiki) [JP/JP]; 〒458-0821 愛知県名古屋市緑区鳴海町字尾崎山 7 6 番 2 号 Aichi (JP).
- (74) 代理人: 佐藤 謙二 (SATO, Kenji); 〒520-8558 滋賀県大津市園山 1 丁目 1 番 1 号 株式会社東レアイ・ピー・イー滋賀支所内 Shiga (JP).
- (81) 指定国 (国内): CN, KR, US.
- (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

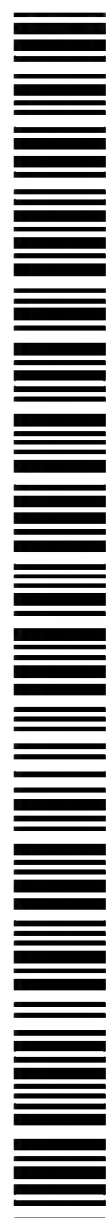
(54) Title: TABLET, PROCESS FOR PRODUCING THE SAME, AND MOLDED ARTICLE OBTAINED THEREFROM

(54) 発明の名称: 錠剤、その製造方法およびそれから得られる成形品

(57) Abstract: Tablets which comprise 1 to 40 vol.% thermoplastic resin and 99 to 60 vol.% filler based on the sum of the thermoplastic resin and the filler. The tablets can be obtained by compacting a thermoplastic resin powder together with a filler or compacting a powder of a composition obtained by melt-kneading a thermoplastic resin together with a filler. The tablets highly efficiently show properties of the filler due to the extraordinarily high filler content.

(57) 要約:

熱可塑性樹脂とフィラーの組成比が両者の合計 100 容量%に対して熱可塑性樹脂 1～40 容量%、フィラー 99～60 容量%である錠剤は、熱可塑性樹脂粉末とフィラーを圧縮成形するか、または熱可塑性樹脂とフィラーとを熔融混練してなる組成物の粉末を圧縮成形して錠剤化することにより得ることができ、フィラー含有率が従来になく高いので、フィラーの特性を高効率に発揮する。



WO 02/094529 A1

明 細 書

錠剤、その製造方法およびそれから得られる成形品

技術分野

本発明は、錠剤、その製造方法およびそれから得られる成形品に関するものである。

近年、デザインの多様化から、成形品の形状の自由度が要求されるようになってきた。しかし、従来、使用していた金属では成形品の自由度に限界がある。そこで、金属代替のため、フィラー強化熱可塑性樹脂で検討が行われている。例えば、熱伝導性、電磁波シールド性、高温時の寸法精度をはじめとする各用途で必要とされる特性が従来のフィラー強化熱可塑性樹脂では満足されず、限りなくフィラー単体に近い特性が要求されるようになってきた。

フィラー高充填配合組成物の取得方法として、押出機のヘッド部を解放した状態で混練・押し出すことを特徴とする製造方法が提案されている（特開平 8 - 1 6 6 3 号公報）。

しかしながら、上記方法では混練時にダイを外していることから、混練時に押出機バレル内の圧力が上がらないために十分に熱可塑性樹脂とフィラーが混合せず、得られた組成物中で組成バラツキがおき、それにより特性バラツキ大きくなる可能性がある。

また、上記ニーズに対し、フィラー単体では、フィラー同士が接合せずに脆い材料しか得られないか、あるいは熱硬化性樹脂を用いた場合、成形加工性、生産性が良好とは言えない。また、フィラー強化熱可塑性組成樹脂において多量のフィラーを充填しようとする場合、通常の熔融混練方法では限界があり、必要特性に見合うまでの十分な高充填化材料の取得は難しかった。

そこで、本発明は上述の問題を鑑み、解消すること、即ち、熔融加工が可能で用いるフィラーの特性を高効率に発揮することをも可能とした錠剤、その製造方法および成形品を提供することを目的とする。

発明の開示

本発明の錠剤は、熱可塑性樹脂とフィラーの組成比が両者の合計 100 容量％に対して熱可塑性樹脂 1～40 容量％、フィラー 99～60 容量％であることを特徴とする。

そして、錠剤の大きさとして縦、横、高さ、直径のいずれかの最大値が 15 mm 未満、最小値が 1 mm 以上であること、かつ、錠剤形状が円柱状、円盤状、キュービック状、楕円柱状、円錐台形状、球状、楕円球状、鶏卵型形状、マセック型または、角柱状であり、かつフィラーの比重が 3.5 以下であること、フィラーが繊維状、板状または鱗片状であること、さらに 25～250℃の温度範囲で固体から液体または気体に変化する物質（X）を 0.1～30 重量部配合すること、さらに 25℃における粘度が 1～5000 mPa・s の液状有機化合物を 0.1～30 重量部配合すること、さらにリン酸エステルを 0.1～30 重量部配合することが好ましい態様である。

また本発明の錠剤の製造方法は、熱可塑性樹脂粉末とフィラーを圧縮成形するか、または熱可塑性樹脂とフィラーとを熔融混練してなる組成物の粉末を圧縮成形して錠剤化して上記の錠剤を得ることを特徴とする。

そして、打錠機あるいはブリケットマシンを用い、錠剤化すること、熱可塑性樹脂粉末の数平均粒子径が 1000 μm 以下であることが好ましい態様である。

また、本発明の成形品は、上記の錠剤を熔融成形したことを特徴とする。

そして、上記の錠剤を射出成形または射出圧縮成形してなる自動車部品、電気・電子部品あるいは熱機器部品に用いられることが好ましい態様である。

発明を実施するための最良の形態

以下、本発明の実施の形態を説明する。本発明において「重量」とは「質量」を意味する。

本発明で用いられる熱可塑性樹脂は、成形加工できる合成樹脂のことである。その具体例としては、例えば、非液晶性半芳香族ポリエステル、非液晶性全芳香族ポリエステルなどの非液晶性ポリエステル、ポリカーボネート、脂肪族ポリアミド、脂肪族－芳香族ポリアミド、全芳香族ポリアミドなどのポリアミド、ポリ

オキシメチレン、ポリイミド、ポリベンズイミダゾール、ポリケトン、ポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルケトン、ポリエーテルスルホン、ポリエーテルイミド、ポリフェニレンオキシド、フェノキシ樹脂、ポリフェニレンスルフィド、液晶ポリマー、ポリプロピレン、ポリエチレン、ポリスチレンなどのオレフィン系重合体、エチレン／プロピレン共重合体、エチレン／１－ブテン共重合体、エチレン／プロピレン／非共役ジエン共重合体、エチレン／アクリル酸エチル共重合体、エチレン／メタクリル酸グリシジル共重合体、エチレン／酢酸ビニル／メタクリル酸グリシジル共重合体およびエチレン／プロピレン－*g*－無水マレイン酸共重合体、ABSなどのオレフィン系共重合体、ポリエステルポリエーテルエラストマー、ポリエステルポリエステルエラストマー等のエラストマーから選ばれる１種または２種以上の混合物が挙げられる（“／”は共重合を表す。以下同じ）。

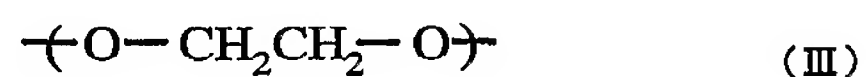
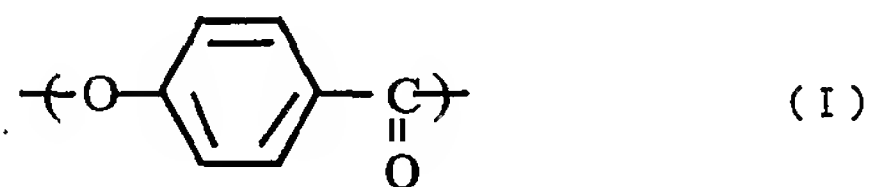
さらに非液晶性半芳香族ポリエステルの具体例としてはポリエチレンテレフタレート、ポリプロピレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレン－２，６－ナフタレート、ポリブチレンナフタレート、ポリ１，４－シクロヘキシレンジメチレンテレフタレートおよびポリエチレン－１，２－ビス（フェノキシ）エタン－４，４’－ジカルボキシレートなどのほか、ポリエチレンイソフタレート／テレフタレート、ポリブチレンテレフタレート／イソフタレート、ポリブチレンテレフタレート／デカンジカルボキシレートおよびポリシクロヘキサレンジメチレンテレフタレート／イソフタレートなどの共重合ポリエステル等が挙げられる。また、ポリアミドの具体例としては、例えば環状ラクタムの開環重合物、アミノカルボン酸の重縮合物、ジカルボン酸とジアミンとの重縮合物などが挙げられ、具体的にはナイロン６、ナイロン４・６、ナイロン６・６、ナイロン６・１０、ナイロン６・１２、ナイロン１１、ナイロン１２などの脂肪族ポリアミド、ポリ（メタキシレンアジパミド）、ポリ（ヘキサメチレンテレフタルアミド）、ポリ（ヘキサメチレンイソフタルアミド）、ポリノナンメチレンテレフタルアミド、ポリ（テトラメチレンイソフタルアミド）、ポリ（メチルペンタメチレンテレフタルアミド）などの脂肪族－芳香族ポリアミド、およびこれらの共重合体が挙げられ、共重合体として例えばナイロン６／ポリ（ヘキサメチレンテ

レフタルアミド)、ナイロン66/ポリ(ヘキサメチレンテレフタルアミド)、ナイロン6/ナイロン6・6/ポリ(ヘキサメチレンイソフタルアミド)、ポリ(ヘキサメチレンイソフタルアミド)/ポリ(ヘキサメチレンテレフタルアミド)、ナイロン6/ポリ(ヘキサメチレンイソフタルアミド)/ポリ(ヘキサメチレンテレフタルアミド)、ナイロン12/ポリ(ヘキサメチレンテレフタルアミド)、ポリ(メチルペンタメチレンテレフタルアミド)/ポリ(ヘキサメチレンテレフタルアミド)などを挙げることができる。なお、共重合の形態としてはランダム、ブロックいずれでもよいが、ランダムが好ましい。また、液晶ポリマーとは、異方性溶融相を形成し得る樹脂であり、エステル結合を有するものが好ましい。例えば芳香族オキシカルボニル単位、芳香族ジオキシ単位、芳香族および/または脂肪族ジカルボニル単位、アルキレンジオキシ単位などから選ばれた構造単位からなり、かつ異方性溶融相を形成する液晶性ポリエステル、あるいは、上記構造単位と芳香族イミノカルボニル単位、芳香族ジイミノ単位、芳香族イミノオキシ単位などから選ばれた構造単位からなり、かつ異方性溶融相を形成する液晶性ポリエステルアミドなどが挙げられ、具体的には、p-ヒドロキシ安息香酸および6-ヒドロキシ-2-ナフトエ酸から生成した構造単位からなる液晶性ポリエステル、p-ヒドロキシ安息香酸から生成した構造単位、6-ヒドロキシ-2-ナフトエ酸から生成した構造単位、芳香族ジヒドロキシ化合物および/または脂肪族ジカルボン酸から生成した構造単位からなる液晶性ポリエステル、p-ヒドロキシ安息香酸から生成した構造単位、4,4'-ジヒドロキシビフェニルから生成した構造単位、テレフタル酸、イソフタル酸等の芳香族ジカルボン酸および/またはアジピン酸、セバシン酸等の脂肪族ジカルボン酸から生成した構造単位からなる液晶性ポリエステル、p-ヒドロキシ安息香酸から生成した構造単位、エチレングリコールから生成した構造単位、テレフタル酸から生成した構造単位からなる液晶性ポリエステル、p-ヒドロキシ安息香酸から生成した構造単位、エチレングリコールから生成した構造単位、テレフタル酸およびイソフタル酸から生成した構造単位からなる液晶性ポリエステル、p-ヒドロキシ安息香酸から生成した構造単位、エチレングリコールから生成した構造単位、4,4'-ジヒドロキシビフェニルから生成した構造単位、テレフタル酸および/または

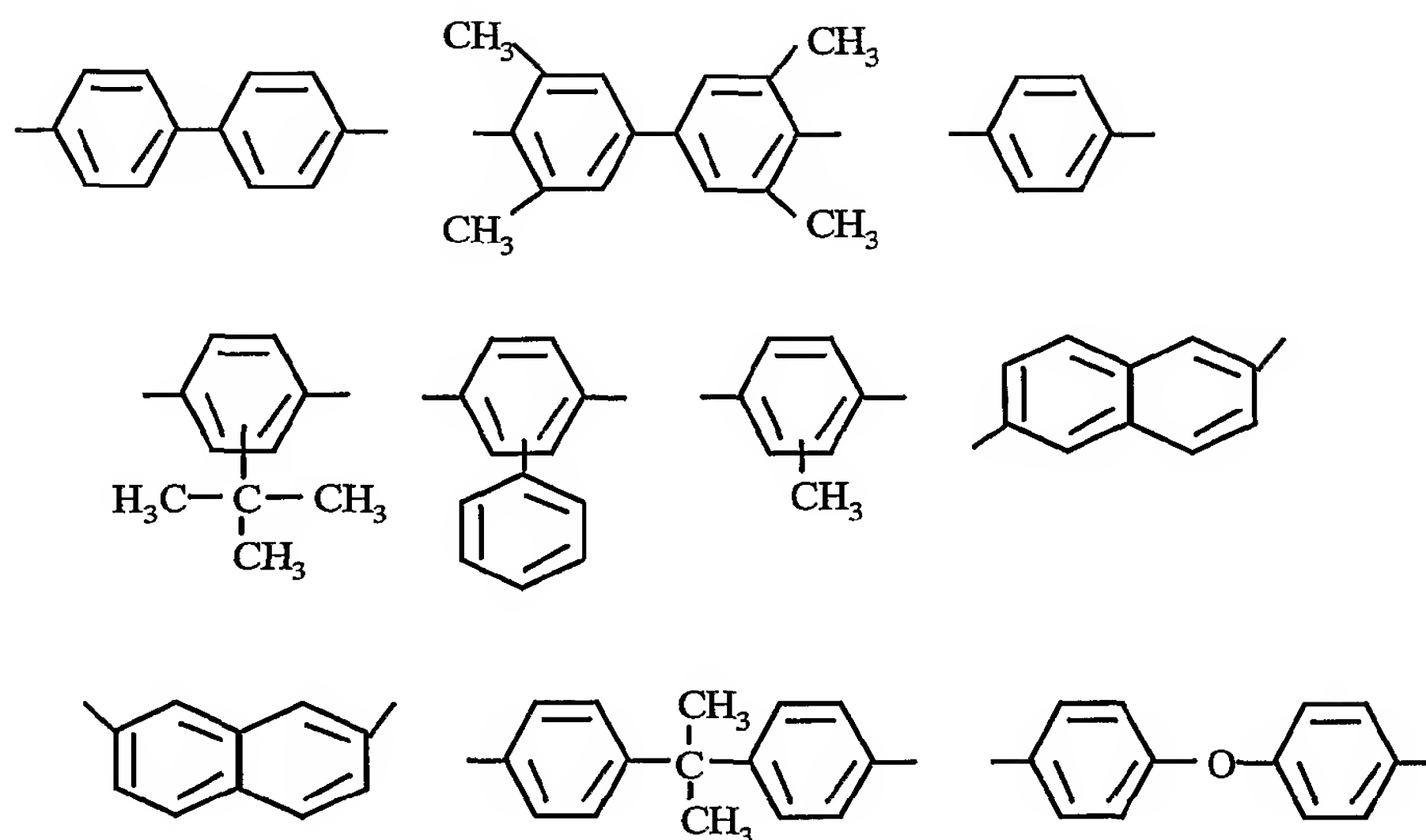
アジピン酸、セバシン酸等の脂肪族ジカルボンから生成した構造単位からなる液晶性ポリエステル、*p*-ヒドロキシ安息香酸から生成した構造単位、エチレングリコールから生成した構造単位、芳香族ジヒドロキシ化合物から生成した構造単位、テレフタル酸、イソフタル酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸などの芳香族ジカルボン酸から生成した構造単位からなる液晶性ポリエステルなど、また液晶性ポリエステルアミドとしては、芳香族オキシカルボニル単位、芳香族ジオキシ単位、芳香族および／または脂肪族ジカルボニル単位、アルキレンジオキシ単位などから選ばれた構造単位以外にさらに *p*-アミノフェノールから生成した *p*-イミノフェノキシ単位を含有した異方性溶融相を形成するポリエステルアミドである。

上記液晶性ポリエステルおよび液晶性ポリエステルアミドのうち、好ましい構造の具体例としては、下記 (I)、(II)、(III) および (IV) の構造単位からなる液晶性ポリエステル、または、(I)、(III) および (IV) の構造単位からなる液晶性ポリエステルなどが挙げられる。

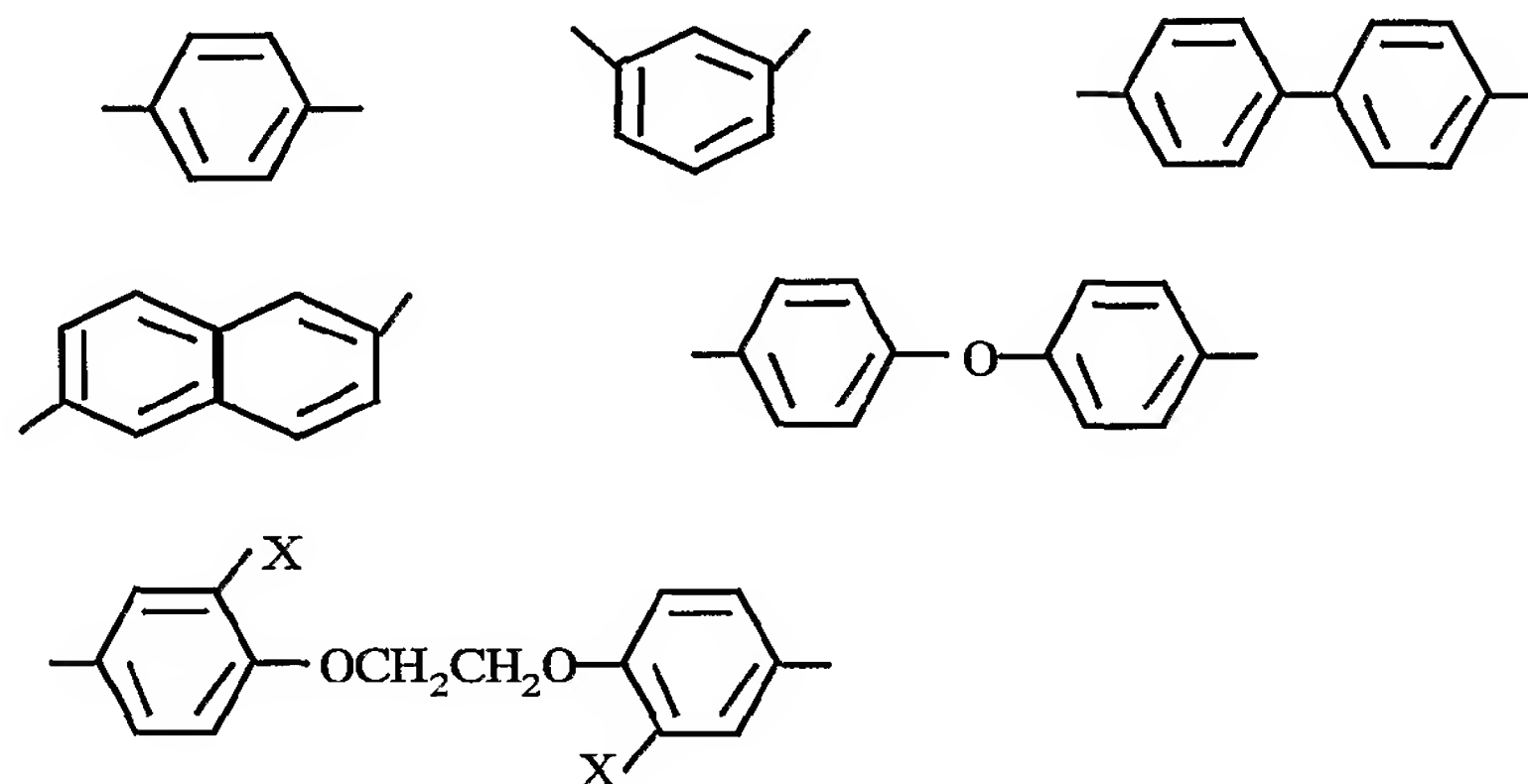
特に好ましいのは (I)、(II)、(III) および (IV) の構造単位からなる液晶性ポリエステルである。



(ただし式中の R 1 は



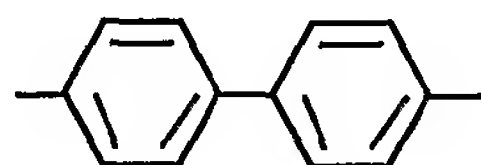
から選ばれた 1 種以上の基を示し、R 2 は



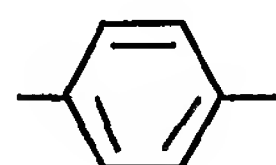
から選ばれた 1 種以上の基を示す。ただし式中 X は水素原子または塩素原子を示す。) 。

上記構造単位(I)は p-ヒドロキシ安息香酸から生成した構造単位であり、構造単位(II)は 4, 4'-ジヒドロキシビフェニル、3, 3', 5, 5'-テトラメチル-4, 4'-ジヒドロキシビフェニル、ハイドロキノン、t-ブチルハイドロキノン、フェニルハイドロキノン、メチルハイドロキノン、2, 6-ジヒドロキシナフタレン、2, 7-ジヒドロキシナフタレン、2, 2-ビス(4-ヒドロキシフェニル)プロパンおよび 4, 4'-ジヒドロキシジフェニルエーテルから選ばれた一種以上の芳香族ジヒドロキシ化合物から生成した構造単位を、構造単位(III)はエチレングリコールから生成した構造単位を、構造単位(IV)はテレフタ

ル酸、イソフタル酸、4,4'-ジフェニルジカルボン酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、1,2-ビス(フェノキシ)エタン-4,4'-ジカルボン酸、1,2-ビス(2-クロルフェノキシ)エタン-4,4'-ジカルボン酸および4,4'-ジフェニルエーテルジカルボン酸から選ばれた一種以上の芳香族ジカルボン酸から生成した構造単位を各々示す。これらのうちR₁が



であり、R₂が



であるものが特に好ましい。

本発明に好ましく使用できる液晶性ポリエステルは、上記したように、構造単位(I)、(III)、(IV)からなる共重合体および上記構造単位(I)、(II)、(III)、(IV)からなる共重合体から選択される1種以上であり、上記構造単位(I)、(II)、(III)および(IV)の共重合量は任意である。しかし、本発明の特性を発揮させるためには次の共重合量であることが好ましい。

すなわち、上記構造単位(I)、(II)、(III)、(IV)からなる共重合体の場合は、上記構造単位(I)および(II)の合計は構造単位(I)、(II)および(III)の合計に対して30～95モル%が好ましく、40～85モル%がより好ましい。また、構造単位(III)は構造単位(I)、(II)および(III)の合計に対して70～5モル%が好ましく、60～15モル%がより好ましい。また、構造単位(I)の(II)に対するモル比[(I)/(II)]は好ましくは75/25～95/5であり、より好ましくは78/22～93/7である。また、構造単位(IV)は構造単位(II)および(III)の合計と実質的に等モルであることが好ましい。

一方、上記構造単位(II)を含まない場合は流動性の点から上記構造単位(I)は構造単位(I)および(III)の合計に対して40～90モル%であることが好ましく、60～88モル%であることが特に好ましく、構造単位(IV)は構造単位(III)と実質的に等モルであることが好ましい。

ここで実質的に等モルとは、末端を除くポリマー主鎖を構成するユニットが等

モルであるが、末端を構成するユニットとしては必ずしも等モルとは限らないことを意味する。

また液晶性ポリエステルアミドとしては、上記構造単位(I)～(IV)以外にp-アミノフェノールから生成したp-イミノフェノキシ単位を含有した異方性溶融相を形成するポリエステルアミドが好ましい。

上記好ましく用いることができる液晶性ポリエステル、液晶性ポリエステルアミドは、上記構造単位(I)～(IV)を構成する成分以外に3, 3'-ジフェニルジカルボン酸、2, 2'-ジフェニルジカルボン酸などの芳香族ジカルボン酸、アジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸、ドデカンジオン酸などの脂肪族ジカルボン酸、ヘキサヒドロテレフタル酸などの脂環式ジカルボン酸、クロルハイドロキノ、3, 4'-ジヒドロキシビフェニル、4, 4'-ジヒドロキシジフェニルスルホン、4, 4'-ジヒドロキシジフェニルスルフィド、4, 4'-ジヒドロキシベンゾフェノン、3, 4'-ジヒドロキシビフェニル等の芳香族ジオール、プロピレングリコール、1, 4-ブタンジオール、1, 6-ヘキサジオール、ネオペンチルグリコール、1, 4-シクロヘキサジオール、1, 4-シクロヘキサジメタノール等の脂肪族、脂環式ジオールおよびm-ヒドロキシ安息香酸、2, 6-ヒドロキシナフトエ酸などの芳香族ヒドロキシカルボン酸およびp-アミノ安息香酸などを液晶性を損なわない程度の範囲でさらに共重合せしめることができる。

本発明において使用する上記液晶性ポリエステルの製造方法は、特に制限がなく、公知のポリエステルの重縮合法に準じて製造できる。

例えば、上記液晶性ポリエステルの製造において、次の製造方法が好ましく挙げられる。

(1) p-アセトキシ安息香酸および4, 4'-ジアセトキシビフェニル、ジアセトキシベンゼンなどの芳香族ジヒドロキシ化合物のジアシル化物と2, 6-ナフタレンジカルボン酸、テレフタル酸、イソフタル酸などの芳香族ジカルボン酸から脱酢酸縮重合反応によって液晶性ポリエステルを製造する方法。

(2) p-ヒドロキシ安息香酸および4, 4'-ジヒドロキシビフェニル、ヒドロキノなどの芳香族ジヒドロキシ化合物と2, 6-ナフタレンジカルボン酸、

テレフタル酸、イソフタル酸などの芳香族ジカルボン酸に無水酢酸を反応させて、フェノール性水酸基をアシル化した後、脱酢酸重縮合反応によって液晶性ポリエステルを製造する方法。

(3) p-ヒドロキシ安息香酸のフェニルエステルおよび4, 4'-ジヒドロキシビフェニル、ハイドロキノンなどの芳香族ジヒドロキシ化合物と2, 6-ナフタレンジカルボン酸、テレフタル酸、イソフタル酸などの芳香族ジカルボン酸のジフェニルエステルから脱フェノール重縮合反応により液晶性ポリエステルを製造する方法。

(4) p-ヒドロキシ安息香酸および2, 6-ナフタレンジカルボン酸、テレフタル酸、イソフタル酸などの芳香族ジカルボン酸に所定量のジフェニルカーボネートを反応させて、それぞれジフェニルエステルとした後、4, 4'-ジヒドロキシビフェニル、ハイドロキノンなどの芳香族ジヒドロキシ化合物を加え、脱フェノール重縮合反応により液晶性ポリエステルを製造する方法。

(5) ポリエチレンテレフタレートなどのポリエステルのポリマー、オリゴマーまたはビス(β -ヒドロキシエチル)テレフタレートなど芳香族ジカルボン酸のビス(β -ヒドロキシエチル)エステルの存在下で(1)または(2)の方法により液晶性ポリエステルを製造する方法。

本発明に使用する液晶性ポリエステルは、フィラーを高充填した場合の流動性低下を抑制するため、溶融粘度は0.5～80 Pa·sが好ましく、特に1～50 Pa·sがより好ましい。また、流動性がより優れた組成物を得ようとする場合には、溶融粘度を40 Pa·s以下とすることが好ましい。

なお、この溶融粘度は融点(T_m) + 10℃の条件で、ずり速度1,000 (1/秒)の条件下で高化式フローテスターによって測定した値である。

ここで、融点(T_m)とは示差熱量測定において、重合を完了したポリマーを室温から20℃/分の昇温条件で測定した際に観測される吸熱ピーク温度(T_{m1})の観測後、 $T_{m1} + 20^\circ\text{C}$ の温度で5分間保持した後、20℃/分の降温条件で室温まで一旦冷却した後、再度20℃/分の昇温条件で測定した際に観測される吸熱ピーク温度(T_{m2})を指す。

上述した熱可塑性樹脂のうち機械的性質、成形性などの点からポリブチレンテ

レフタレート、ポリブチレンナフタレート、ポリ 1, 4-シクロヘキシレンジメチレンテレフタレート、ポリエチレン-2, 6-ナフタレートおよびポリエチレンテレフタレートなどの非液晶性ポリエステル、ナイロン 6、ナイロン 6・6、ナイロン 12、ナイロン 4・6、ポリノナンメチレンテレフタルアミド、ナイロン 6/ポリ(ヘキサメチレンテレフタルアミド)、ナイロン 66/ポリ(ヘキサメチレンテレフタルアミド)、ナイロン 6/ナイロン 6・6/ポリ(ヘキサメチレンイソフタルアミド)、ポリ(ヘキサメチレンイソフタルアミド)/ポリ(ヘキサメチレンテレフタルアミド)、ナイロン 6/ポリ(ヘキサメチレンイソフタルアミド)/ポリ(ヘキサメチレンテレフタルアミド)、ナイロン 12/ポリ(ヘキサメチレンテレフタルアミド)、ナイロン 6/ナイロン 6・6/ポリ(ヘキサメチレンイソフタルアミド)、ポリ(メチルペンタメチレンテレフタルアミド)/ポリ(ヘキサメチレンテレフタルアミド)などのポリアミド、p-ヒドロキシ安息香酸および 6-ヒドロキシ-2-ナフトエ酸から生成した構造単位からなる液晶性ポリエステル、p-ヒドロキシ安息香酸から生成した構造単位、エチレングリコールから生成した構造単位、4, 4'-ジヒドロキシビフェニルから生成した構造単位、テレフタル酸および/またはアジピン酸、セバシン酸等の脂肪族ジカルボンから生成した構造単位からなる液晶性ポリエステル、p-ヒドロキシ安息香酸から生成した構造単位、エチレングリコールから生成した構造単位、芳香族ジヒドロキシ化合物から生成した構造単位、テレフタル酸、イソフタル酸、2, 6-ナフタレンジカルボン酸などの芳香族ジカルボン酸から生成した構造単位からなる液晶性ポリエステル、ポリカーボネート、ポリフェニレンスルフィド、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン、ABS、ポリフェニレンオキシド、フェノキシ樹脂、から選ばれる 1 種または 2 種以上の混合物が好ましく用いることができる。

なかでもナイロン 6、ポリカーボネート、ポリブチレンテレフタレート、ポリフェニレンスルフィド、p-ヒドロキシ安息香酸および 6-ヒドロキシ-2-ナフトエ酸から生成した構造単位からなる液晶性ポリエステル、p-ヒドロキシ安息香酸から生成した構造単位、エチレングリコールから生成した構造単位、芳香族ジヒドロキシ化合物から生成した構造単位、テレフタル酸から生成した構造単位

位の液晶性ポリエステル、p-ヒドロキシ安息香酸から生成した構造単位、エチレングリコールから生成した構造単位、テレフタル酸から生成した構造単位の液晶性ポリエステルを特に好ましく用いることができる。

本発明に用いるフィラーとしては、繊維状もしくは、板状、鱗片状、粒状、不定形状、破砕品など非繊維状の充填剤が挙げられ、具体的には例えば、ガラス繊維、PAN系やピッチ系の炭素繊維、ステンレス繊維、アルミニウム繊維や黄銅繊維などの金属繊維、芳香族ポリアミド繊維などの有機繊維、石膏繊維、セラミック繊維、アスベスト繊維、ジルコニア繊維、アルミナ繊維、シリカ繊維、酸化チタン繊維、炭化ケイ素繊維、ロックウール、チタン酸カリウムウィスカー、チタン酸バリウムウィスカー、ほう酸アルミニウムウィスカー、窒化ケイ素ウィスカー、マイカ、タルク、カオリン、シリカ、炭酸カルシウム、ガラスビーズ、ガラスフレーク、ガラスマイクロバルーン、クレー、二硫化モリブデン、ワラストナイト、酸化チタン、酸化亜鉛、ポリリン酸カルシウム、グラファイト、金属粉、金属フレーク、金属リボン、金属酸化物、カーボン粉末、黒鉛、カーボンフレーク、鱗片状カーボン、ナノカーボンチューブなどが挙げられる。金属粉、金属フレーク、金属リボンの金属種の実例としては銀、ニッケル、銅、亜鉛、アルミニウム、ステンレス、鉄、黄銅、クロム、錫などが例示できる。ガラス繊維あるいは炭素繊維の種類は、一般に樹脂の強化用に用いるものなら特に限定はなく、例えば長繊維タイプや短繊維タイプのチョップドストランド、ミルドファイバーなどから選択して用いることができる。本発明においては、上記フィラーのうち、繊維状、板状、鱗片状の形状および破砕品が錠剤（錠剤）の取得性の点から好ましく用いられ、さらに成形品の強度等の点から繊維状あるいは板状、鱗片状が好ましい。なお、本発明において繊維状は、通常繊維状と呼ばれるものであって、ウィスカー形状のものも含み、例えば、平均繊維長あるいは平均長径／平均繊維径あるいは平均短径（アスペクト比）3～10000程度の形状を有するものが挙げられる。板状、鱗片状は、通常、板状、鱗片状と呼ばれるものであって、長径に対し厚みを有する形状を有し、例えば平均長径／平均厚みが3～5000程度のものが挙げられる。粒状は、比較的球状に近い形状をなす粒状のものであって、例えば、平均長径／平均短径が2未満程度のものが挙げられる。不定形状

は、粉碎品等の形が定まっていないものである。なお、これらの充填剤の形状（平均繊維長／平均繊維径、平均長径／平均厚み、平均長径／平均短径）は、走査型電子顕微鏡（SEM）により繊維著、繊維系、長径、短径あるいは厚みを各100個測定し、その数平均をもとめ、算出することができる。

また、上記の充填剤は機械強度と成形品そりのバランスを得るために2種以上を併用して使用することもでき、例えば、ガラス繊維とマイカあるいはカオリン、ガラス繊維とガラスビーズ、炭素繊維とマイカあるいはカオリン、炭素繊維と黒鉛等が挙げられる。

なお、本発明に使用する上記の充填剤はその表面を公知のカップリング剤（例えば、シラン系カップリング剤、チタネート系カップリング剤など）、その他の表面処理剤で処理して用いることもできる。また、上記の充填剤は、導電性物質で被覆して用いることもできる。

また、ガラス繊維はエチレン／酢酸ビニル共重合体などの熱可塑性樹脂、エポキシ樹脂などの熱硬化性樹脂で被覆あるいは集束されていてもよい。

本発明で用いられる熱可塑性樹脂とフィラーとの配合量は、用いる充填剤の特性を発揮し、かつ溶融加工性とのバランスの点から、熱可塑性樹脂とフィラーの合計量100容量％に対し、通常、熱可塑性樹脂1～50容量％、フィラー99～50容量％であり、熱可塑性樹脂1～40容量％、フィラー99～60容量％が好ましく、熱可塑性樹脂2～25容量％、フィラー98～75容量％であることがさらに好ましく、熱可塑性樹脂3～20容量％、フィラー97～80容量％であることが特に好ましく、とりわけ熱可塑性樹脂3容量％以上15容量％未満、フィラー97容量％以下85容量％超であることが好ましい。

また、本発明には、錠剤としての形状保持と成形時の錠剤の安定的な圧壊による計量安定性付与効果の両立を図るためにさらに25～250℃の温度範囲で力学的に固体の状態から液体または気体に変化する物質（X）を添加することが可能である。

本発明に使用される物質（X）とは、すなわち、25～250℃の温度範囲の中で力学的に固体の状態から流動性に富む液体や気体の状態になる物質であるが、このような物質として、例えば、脂肪酸の1価アルコールエステル、脂肪酸金属

塩、多塩基酸の1価アルコールエステル、多価アルコールの脂肪酸エステル、およびそれらの誘導体、グリセリンの脂肪酸エステル、シリコーンレジン、フェノール系化合物、ホスファイト系化合物、チオエーテル系化合物、ベンゾフェノン系化合物、アミド基含有化合物、シアヌレート化合物およびその塩等で融点または軟化点が40～250℃のものが挙げられる。具体的には、ステアリン酸メチル、ミリスチン酸ミリスチル、ステアリン酸ステアレート、ステアリン酸ナトリウム、ステアリン酸カルシウム、ステアリン酸マグネシウム、ステアリン酸カリウム、ステアリン酸リチウム、ステアリン酸亜鉛、ステアリン酸バリウム、ステアリン酸アルミニウム、モンタン酸ナトリウム、モンタン酸カルシウム、モンタン酸マグネシウム、モンタン酸カリウム、モンタン酸リチウム、モンタン酸亜鉛、モンタン酸バリウム、モンタン酸アルミニウム、フタル酸ジステアリル、ソルビタントリスステアレート、ソルビタンモノステアレート、ソルピタンモノステアレート、ソルピタンジステアレート、ソルビタンモノパルミテート、ソルビタンモノステアレート、ポリエチレングリコールモノステアレート、ポリエチレングリコールジステアレート、ポリプロピレングリコールモノステアレート、ペンタエリスリトールモノステアレート、ステアリン酸モノグリセライド、パルミチン酸・ステアリン酸モノグリセライド、ステアリン酸モノ・ジグリセライド、ステアリン酸・オレイン酸・モノ・ジグリセライド、ベヘニン酸モノグリセライド、メタクリル酸ベヘニル、モンタン酸エステルおよびその誘導体、ステアリン酸エステルおよびその誘導体、ビスフェノール型単官能および多官能エポキシ化合物、2, 2-メチレンビス(4, 6-ジ-tert-ブチルフェニル)オクチルホスフェート、ジ(2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスフェート、ビス-(2, 6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスフェート、トリエチレングリコール-ビス(3-(3-tert-ブチル-5-メチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート)、1, 6-ヘキサンジオール-ビス(3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート)、2, 4-ビス-(n-オクチルチオ)-6-(4-ヒドロキシ-3, 5-ジ-tert-ブチルアニリノ)-1, 3, 5-トリアジン、ペンタエリスチール-テトラキス(3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)ブ

ロピオネート)、2, 2-チオージエチレンビス(3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート)、オクタデシル-3-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、N, N'-ヘキサメチレンビス(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-ヒドロシンナミド)、3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-ベンジルフォスフォネート-ジエチルエステル、1, 3, 5-トリメチル-2, 4, 6-トリス(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)ベンゼン、トリス-(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)-イソシアヌレート、ビスフェノールAペンタエリスリトールホスファイト、トリス(2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル)ホスファイト、ジ(2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス(2, 6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェニル)ペンタエリスリトールジホスファイト、テルペンフェノール、2-ヒドロキシ-4-n-オクチルオキシベンゾフェノン、エチレンビスステアリルアミド、エチレンビスオレイルアミド、ステアリルエルカミド、トリアリルシアヌレート、メラミン/シアヌレート塩、2, 5-ビス(5'-tert-ブチルベンゾオキソザリル(2))チオフェン、エポキシ基または、メタクリル基または、アミノ基含有あるいは未官能のシリコーンレジンが挙げられる。また、分解発泡剤のように25℃以下で固体で、25～250℃の温度範囲で気体に変化する物質が挙げられる。そのような物質として具体的には、アゾジカルボンアミド、アゾビスイソブチロニトリル、N, N'-ジニトロソペンタメチレンテトラミン、P, P'-ジニトロソペンタメチレンテトラミン、P, P'-オキシビスベンゼンスルホニルヒドラジン、アゾジカルボン酸バリウム、トリヒドラジノトリアジン、5-フェニルテトラゾール等が挙げられる。

本発明において物質(X)として上記の物質のいずれか1種、または2種以上の混合物であってもよい。

本発明に用いる物質(X)は、ハンドリング性、溶融可塑性の点から25～250℃の温度範囲で固体から液体または気体に変化することが必須であり、好ましくは、40～230℃、より好ましくは、50～220℃、さらに好ましくは、60～200℃で固体から液体または気体に変化することが好ましい。

本発明においては、錠剤を製造する際には物質（X）は固体で存在し、錠剤型組成物を溶融成形する際には液体または気体に変化することができる。本発明においては、このような物質（X）を用いることにより、錠剤としての形状保持と成形時の錠剤の安定的な圧壊による計量安定性付与効果の両立が図れるものと推察される。

上記物質（X）の添加量は、熱可塑性樹脂とフィラーの合計量 100 重量部に対し、0.1～30 重量部、好ましくは 0.1～25 重量部、より好ましくは 1～20 重量部、さらに好ましくは 2～15 重量部である。なかでも 3～10 重量部が、特に好ましい。

物質（X）の添加量が本発明の範囲より多すぎる場合、得られた成形品表面にブリードアウトしてくると共に、それによって熱可塑性樹脂とフィラー界面の剥離を引き起こし、機械物性が低下する傾向にあり、少なすぎる場合、添加による成形時の圧壊による計量安定性付与効果が小さい。

また、本発明には、錠剤を製造する際に組成分布を低減し、溶融成形する際に錠剤型組成物の圧壊性が均一とすることで成形時の計量時間の安定を図るための手法として 25℃における粘度が 1～5000 mPa・s の液状有機化合物を添加することが可能である。25℃における粘度が 1～5000 mPa・s の液状有機化合物とは、25℃で液状で流動性のある有機化合物である。このような物質として、例えば、脂肪酸の 1 価アルコールエステル、多塩基酸の 1 価アルコールエステル、多価アルコールの脂肪酸エステル、およびそれらの誘導体、グリセリンの脂肪酸エステル、シリコンオイル、ホスファイト系化合物等で融点が 25℃未満のものが挙げられる。具体的には、2-エチルヘキサン酸セチル、ヤシ脂肪酸メチル、ラウリン酸メチル、ミリスチン酸イソプロピル、ミリスチン酸オクチルドデシル、ステアリン酸ブチル、ステアリン酸 2-エチルヘキシル、ステアリン酸イソトリデシル、カプリン酸メチル、ミリスチン酸メチル、オレイン酸メチル、オレイン酸オクチル、オレイン酸ラウリル、オレイン酸オレイル、オレイン酸 2-エチルヘキシル、オレイン酸デシル、オレイン酸オクチドデシル、オレイン酸イソブチル、アジピン酸ジメチル、アジピン酸ジオレイル、アジピン酸エステル、フタル酸ジトリデシル、アジピン酸ジイソブチル、アジピン酸ジイソデシル、アジピン

酸ジブチルグリコール、フタル酸 2-エチルヘキシル、フタル酸ジイソノニル、フタル酸ジデシル、トリメリット酸トリ 2-エチルヘキシル、トリメリット酸トリイソデシル、ソルピタンモノラウレート、ソルピタントリオレート、ソルピタンモノオレート、ソルピタンセキスオレート、ソルピタンモノラウレート、ポリオキシメチレンソルピタンモノラウレート、ポリオキシメチレンソルピタンモノパルミネート、ポリオキシメチレンソルピタンモノステアレート、ポリオキシメチレンソルピタンモノオレート、ポリオキシメチレンソルピタンテトラオレート、ポリエチレングリコール、ポリエチレングリコールモノラウレート、ポリエチレングリコールモノオレート、ポリオキシエチレンビスフェノール A ラウリン酸エステル、ペンタエリスリトール、ペンタエリスリトールモノオレート、オレイン酸モノジグリセライド、オレイン酸モノグリセライド、オレイン酸モノグリセライド、2-エチルヘキサン酸トリグリセライド、カプリル酸モノジグリセライド、カプリル酸トリグリセライド、メタクリル酸ラウリル、メタクリル酸ミリスチル、ジメチルフタレート、ジエチルフタレート、ジブチルフタレート、ジヘプチルフタレート、ジ-2-エチルヘキチルフタレート、ジ-n-オクチルフタレート、ジイソデシルフタレート、ブチルベンジルフタレート、ジイソノニルフタレート、エチルフタリルエチレングリコレート、トリ-2-エチルヘキシルトリメリテート、メチルアセチルリシノレート、グリセルトリアセテート、2-エチルヘキシルアセテート、トリフェニルホスファイト、ジブチルハイドロジエンホスファイト、ジメチルシリコーンオイル、メチルフェニルシリコーンオイル、メチルハイドロジエンシリコーンオイル、アルキル変性シリコーンオイル、ポリエーテル変性シリコーンオイル、アルコール変性シリコーンオイル、アミノ変性シリコーンオイル、エポキシ変性シリコーンオイル、フェノール変性シリコーンオイル、カルボキシル変性シリコーンオイル、ヘキサトリデシル-1, 1, 3-トリス(2-メチル-4-ヒドロキシル-5-t-ブチルフェニル)ブタントリホスファイト、テトラトリデシル-4, 4'-ブチリデンビス-(3-メチル-6-t-ブチルフェノール)-ジ-ホスファイト等が挙げられる。

本発明において 25℃における粘度が 1 ~ 5000 mPa·s の液状有機化合物のいずれか 1 種、または 2 種以上の混合物であってもよい。

本発明に用いる液状有機化合物の 25℃における粘度は、組成物中への液状有機化合物の分散性、本発明の効果である成形時の計量時間の安定化の点から、1～5000 mPa・sであることが必須であり、好ましくは、2～2000 mPa・s、より好ましくは10～500 mPa・sである。

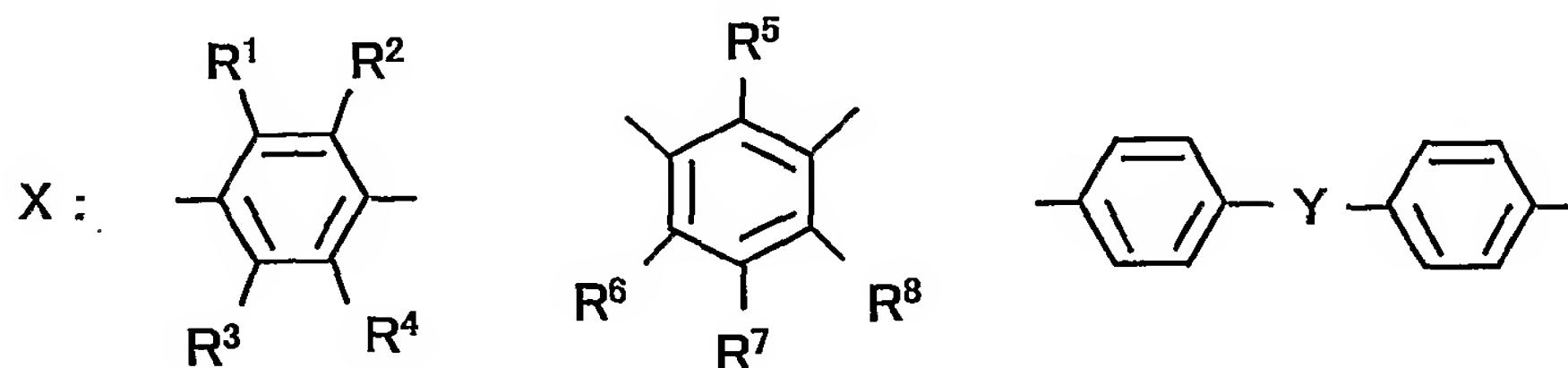
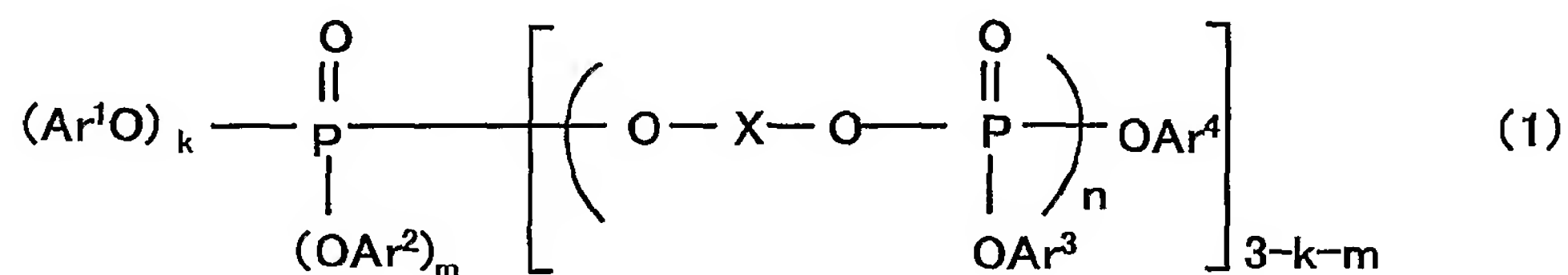
なお、25℃における粘度は、回転式粘度計（B型粘度計）により測定する。

本発明においては、このような液状有機化合物を用いることにより、錠剤を製造する際に均一に分散し、錠剤を熔融成形する際に計量時の圧壊が均一となり成形時の計量時間の安定を図れるものと推察される。

上記液状有機化合物を添加する場合の添加量は、熱可塑性樹脂とフィラーの合計量100重量部に対し、0.1～30重量部、好ましくは0.1～25重量部、より好ましくは1～20重量部、さらに好ましくは2～15重量部である。なかでも3～10重量部が、特に好ましい。

液状有機化合物の添加量が本発明の範囲より多すぎる場合、得られた成形品表面にブリードアウトしてくると共に、それによって熱可塑性樹脂とフィラー界面の剥離を引き起こし、かえって機械物性の低下する傾向にあり、少なすぎる場合、成形時の計量時間の安定化による成形品の特性バラツキ低減付与効果が得られない。

本発明において錠剤の成形時の易圧壊性と流動性を向上させるためにリン酸エステルを添加することが可能である。本発明に使用されるリン酸エステルとしては、リン酸のモノエステル、ジエステル、トリエステル、テトラエステルから選ばれ、好ましくは、下記式（1）で表されるものが挙げられる。



まず前記式(1)で表されるリン酸エステルの構造について説明する。前記式(1)の式中 n は0以上の整数であり、好ましくは0~10、特に好ましくは0~5である。上限は分散性の点から40以下が好ましい。

また k 、 m は、それぞれ0以上2以下の整数であり、かつ $k+m$ は、0以上2以下の整数であるが、好ましくは k 、 m はそれぞれ0以上1以下の整数、特に好ましくは k 、 m はそれぞれ1である。

また前記式(1)の式中、 $R^3 \sim R^{10}$ は同一または相異なる水素または炭素数1~5のアルキル基を表す。ここで炭素数1~5のアルキル基の具体例としては、メチル基、エチル基、 n -プロピル基、イソプロピル基、 n -ブチル基、 sec -ブチル基、 $tert$ -ブチル基、 n -イソプロピル、ネオペンチル、 $tert$ -ペンチル基、2-イソプロピル、ネオペンチル、 $tert$ -ペンチル基、3-イソプロピル、ネオペンチル、 $tert$ -ペンチル基、ネオイソプロピル、ネオペンチル、 $tert$ -ペンチル基などが挙げられるが、水素、メチル基、エチル基が好ましく、とりわけ水素が好ましい。

また Ar^1 、 Ar^2 、 Ar^3 、 Ar^4 は同一または相異なる芳香族基あるいはハロゲン含有しない有機残基で置換された芳香族基を表す。かかる芳香族基としては、ベンゼン骨格、ナフタレン骨格、インデン骨格、アントラセン骨格を有する芳香族基が挙げられ、なかでもベンゼン骨格、あるいはナフタレン骨格を有するものが好ましい。これらはハロゲン含有しない有機残基(好ましくは炭素数1~8の有機残基)で置換されていてもよく、置換基の数にも特に制限はないが、1~3個であることが好ましい。具体例としては、フェニル基、トリル基、キシリル基、クメニル基、メシチル基、ナフチル基、インデニル基、アントリル基などの芳香族基が挙げられるが、フェニル基、トリル基、キシリル基、クメニル基、ナフチル基が好ましく、特にフェニル基、トリル基、キシリル基が好ましい。

また Y は直接結合、O、S、 SO_2 、 $C(CH_3)_2$ 、 CH_2 、 $CHPh$ を表し、 Ph はフェニル基を表す。

このようなリン酸エステルの具体例としては、大八化学社製PX-200、PX-201、PX-130、CR-733S、TPP、CR-741、CR-747、TCP、TXP、CDPから選ばれる1種または2種以上が使用すること

ができ、中でも好ましくはPX-200、TPP、CR-733S、CR-741、CR-747から選ばれる1種または2種以上、特に好ましくはPX-200、CR-733S、CR-741を使用することができるが、最も好ましくはPX-200である。

本発明においてリン酸エステルのいずれか1種、または2種以上の混合物であってもよい。

本発明においては、リン酸エステルは成形加工時の可塑化特性に優れるだけでなく、熱可塑性樹脂とフィラーとの馴染みが良いために、リン酸エステルを用いることにより、錠剤としての形状保持と成形時の錠剤の安定的な圧壊による計量安定性付与効果の両立とさらに金型内での流動性向上効果を併せて得られるものと推察される。

上記リン酸エステルを添加する場合の添加量は、熱可塑性樹脂とフィラーの合計量100重量部に対し、0.1～30重量部、好ましくは0.1～25重量部、より好ましくは1～20重量部、さらに好ましくは2～15重量部である。なかでも3～10重量部が、特に好ましい。

リン酸エステルの添加量が本発明の範囲より多すぎる場合、得られた成形品表面にブリードアウトしてくると共に、それによって熱可塑性樹脂とフィラー界面の剥離を引き起こし、機械物性が低下する傾向にあり、少なすぎる場合、添加による成形時の計量安定性、流動安定性付与効果が小さい。

本発明における錠剤には、本発明の効果を損なわない範囲で他の成分、例えば酸化防止剤や耐熱安定剤（ヒンダードフェノール系、ヒドロキノン系、ホスファイト系およびこれらの置換体等）、耐候剤（レゾルシノール系、サリシレート系、ベンゾトリアゾール系、ベンゾフェノン系、ヒンダードアミン系等）、離型剤及び滑剤（モンタン酸及びその金属塩、そのエステル、そのハーフエステル、ステアリルアルコール、ステアラミド、各種ビスアミド、ビス尿素及びポリエチレンワックス等）、顔料（硫化カドミウム、フタロシアニン、着色用カーボンブラック等）、染料（ニグロシン等）、結晶核剤（タルク、シリカ、カオリン、クレー等）、可塑剤（p-オキシ安息香酸オクチル、N-ブチルベンゼンスルホンアミド等）、帯電防止剤（アルキルサルフェート型アニオン系帯電防止剤、4級アン

モニウム塩型カチオン系帯電防止剤、ポリオキシエチレンソルビタンモノステアレートのような非イオン系帯電防止剤、ベタイン系両性帯電防止剤等）、難燃剤（例えば、赤燐、燐酸エステル、メラミンシアヌレート、水酸化マグネシウム、水酸化アルミニウム等の水酸化物、ポリリン酸アンモニウム、臭素化ポリスチレン、臭素化ポリフェニレンエーテル、臭素化ポリカーボネート、臭素化エポキシ樹脂あるいはこれらの臭素系難燃剤と三酸化アンチモンとの組み合わせ等）、他の重合体を添加することができる。

本発明において、錠剤は、粉末状の原料を圧縮成形することにより得ることができる。圧縮成形には、打錠機（ロータリー、単発式、2連式、3連式）あるいはブリケットマシンを用いることが好ましい。上記粉末状の原料としては、樹脂組成物中に含有せしめるべき、熱可塑性樹脂の粉末（熱可塑性樹脂粉末）、フィラーなどが挙げられるが、予め熱可塑性樹脂とフィラーとを熔融混練して得られる組成物の粉末を用いることもでき、これらの一種以上を所望の組成となるよう適宜選択して用いることができる。

本発明の錠剤の製造方法は、たとえば熱可塑性樹脂粉末およびフィラーをバンバリーミキサー、ニーダー、ロール、単軸もしくは二軸の押出機などを用い、固相状態で均一ブレンドし、打錠機あるいはブリケットマシンにより錠剤（タブレット）化することにより得ることができる。また、熱可塑性樹脂とフィラーとをバンバリーミキサー、ニーダー、ロールを用いて予めドライブレンドし、もしくはドライブレンドしないで、単軸もしくは二軸の押出機などを用い、一度熔融混練し、冷却粉碎して粉末状としたのち、打錠機あるいはブリケットマシンにより錠剤（タブレット）化することも可能である。この場合、熔融混練に供する熱可塑性樹脂としては、熔融混練が可能であれば、粉末状でもペレット状でも特に制限はないが、フィラーの分散不良による特性のバラツキを低減する点から粉末状あるいは粉碎品であることが好ましい。また、単軸もしくは2軸押出機を用いて、予め熔融混練した組成物を粉末状とする場合、フィラーの使用量が多いと、流動性が悪化するため、ダイからの押出ができずペレット化が困難になる場合があるが、その場合には、特開平8-1663号公報に記載の如く、押出機のヘッド部を開放した状態で混練・押出すことも可能である。フィラーが多量である場合、

フレーク状の組成物が得られることもある。本発明においてはこれらの方法で予め熔融混練して得られたペレットもしくはフレーク状の組成物を必要により、冷却粉碎して粉末状とした後、錠剤化する。また、これらの方法を組み合わせて錠剤化することも可能である。すなわち、熱可塑性樹脂とフィラーを熔融混練してなる組成物と、熱可塑性樹脂粉末および／又はフィラーとを、所望の含有量となるよう調整し、錠剤化することも可能である。上記方法のうち、工程が簡素である点で、熱可塑性樹脂粉末およびフィラーを固相状態で均一ブレンドした混合物を打錠機あるいはブリケットマシンにより錠剤（タブレット）化する方法が好ましい。

上記熱可塑性樹脂粉末としては、通常、粉末状で入手できる熱可塑性樹脂の他、ペレットを常温あるいは冷凍粉碎することによっても得ることができる。冷凍粉碎は、ドライアイスあるいは液体窒素等で凍結させた後、一般的に知られている通常のハンマータイプ粉碎機、カッタータイプ粉碎機あるいは石臼型の粉碎機により行うことができる。本発明において用いる熱可塑性樹脂粉末としては、得られる錠剤間の組成の均一化および得られた錠剤のハンドリング性を良好にする点から、粒子の最大長径の数平均粒子径が $1000\mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、 $800\mu\text{m}$ 以下であることがより好ましく、 $500\mu\text{m}$ 以下であることがさらに好ましい。かかる粒径を有する粉末を得るには、粉碎などにより得られた粉体を適宜所望の大きさの篩を用いてふるい分けすればよい。

また、フィラーについても熔融加工性、得られる成形品の表面外観等を考慮した場合、フィラーのサイズはJIS-K0069に基づく篩分け試験法に基づき測定した場合、 $1000\mu\text{m}$ に相当する篩を通過するものであることが好ましく、より好ましくは $800\mu\text{m}$ に相当する篩を通過するもの、特に $500\mu\text{m}$ に相当する篩を通過するものであることが好ましい。また、下限については、 $5\mu\text{m}$ に相当する篩は実質的に通過しないものが取り扱い性の点から、好ましい。なお、ここで「実質的に通過しない」とは、95重量%以上が通過しないことを意味する。

かかるフィラーは市販されているものから選択してもよいし、また、篩を用いて分級し、必要なサイズのものを取り出し使用することも可能である。また、用いるフィラーの形状については、組成物のペレットの取得性から、繊維状、板状、

鱗片状および破碎品が好ましく用いられ、さらに製造上得られた成形品の強度等の点から繊維状あるいは板状、鱗片状が好ましい。

さらに、必要特性によっては、異なった粒子径のものを2種以上併用しても良い。

本発明において、必要に応じて配合し得る他の成分を配合する場合、その配合方法に特に制限はなく、予め熱可塑性樹脂に溶融混練した熱可塑性樹脂組成物の粉末を熱可塑性樹脂粉末として用いてもよいし、熱可塑性樹脂粉末とフィラーを固相状態で均一にブレンドする際に、かかる他の成分も一緒に添加してブレンドしてもよい。また、予め熱可塑性樹脂とフィラーとを溶融混練した組成物の粉末を用いる場合には、その溶融混練の際に他の成分も一緒に添加してブレンドしてもよい。さらには錠剤のまわりに付着せしめることにより添加してもよい。

本発明の錠剤の錠剤形状としては、輸送時の形状保持性と成形時の易圧壊性を考慮した場合、例えば、円柱状、楕円柱状、円錐台形状、球状、楕円球状、鶏卵型形状、マセック型、円盤状、キュービック状、角柱状のものが挙げられる。なかでも加工時の計量安定性の点から円柱状、楕円柱状、球状、楕円球状、鶏卵型形状、マセック型が好ましい。

また、錠剤の錠剤サイズとしては、底面15mm直径以下×長さ20mm以下が好ましく、なかでも底面の直径または長さ（高さ）の最大値が15mm未満であることが好ましく、最小値が1mm以上であることが好ましい。なお、底面が円状でないものに関して、最大径、最小径の規定方法としては、得られた錠剤が入る仮想の直方体容器において、その縦、横、高さのいずれかの最大値、最小値を測定することとする。かかる錠剤の縦、横、高さ、直径のいずれかの最大値は15mm未満であることが好ましく、12mm以下であることがより好ましい。また、最小値としては1mm以上であることが好ましく、1.5mm以上であることがより好ましい。

かかる方法を用いることにより、従来、成し得なかったフィラー高充填組成物を得ることが可能となる。

さらに、熱可塑性樹脂とフィラーとの均一混合性の点からフィラーの比重は3.5以下であることが好ましく、特に3以下であることが好ましい。なお、複数種

のフィラーを用いる場合には、配合量の最も多いフィラーの少なくとも1種の比重が上記範囲にあることが好ましい。

実施例

以下、実施例を挙げて本発明を詳細に説明するが、本発明の骨子は以下の実施例にのみ限定されるものではない。

参考例1 熱可塑性樹脂

P P S - 1 (リニアタイプ) : ポリフェニレンスルフィド、M 2 5 8 8 (東レ社製) をサンプルミル (協立理工社製 S K - M 型) にて粉碎し、篩にて60メッシュパス、150メッシュオンで分級して数平均粒子径 $200\ \mu\text{m}$ のものを得た。

P P S - 2 (リニアタイプ) : ポリフェニレンスルフィド、M 2 5 8 8 (東レ社製) をサンプルミル (協立理工社製 S K - M 型) にて粉碎し、篩にて16メッシュパス、32メッシュオンで分級して数平均粒子径 $800\ \mu\text{m}$ のものを得た。

P A 6 : ポリアミド、C M 1 0 0 1 (東レ社製) を液体窒素に浸し、サンプルミル (協立理工社製 S K - M 型) にて粉碎し、篩にて42メッシュパス、80メッシュオンで分級して数平均粒子径 $300\ \mu\text{m}$ のものを得た。

L C P : 液晶性ポリエステル、“シベラス” L 2 0 1 E (東レ社製) を液体窒素に浸し、サンプルミル (協立理工社製 S K - M 型) にて粉碎し、篩にて80メッシュパス、150メッシュオンで分級して数平均粒子径 $150\ \mu\text{m}$ のものを得た。

P C : ポリカーボネート、ユーピロン H 3 0 0 0 (三菱エンブラ社製) を液体窒素に浸し、サンプルミル (協立理工社製 S K - M 型) にて粉碎し、篩にて60メッシュパス、150メッシュオンで分級して数平均粒子径 $200\ \mu\text{m}$ のものを得た。

P B T : ポリブチレンテレフタレート、1 1 0 0 S (東レ社製) を液体窒素に浸し、サンプルミル (協立理工社製 S K - M 型) にて粉碎し、篩にて42メッシュパス、80メッシュオンで分級して数平均粒子径 $300\ \mu\text{m}$ のものを得た。

なお、上記において数平均粒子径は島津社製レーザー回折式粒度分布測定装置を用いて測定した。

参考例2 フィラー

炭素繊維 (C F) : M L D 3 0 (繊維状フィラー、繊維径 $7\ \mu\text{m}$ 、東レ社製)

ガラス繊維（GF）：EPDM70M10A（繊維状フィラー、日本電気ガラス社製）

グラファイト（KS）：KS-75（鱗片状フィラー、ティムカルジャパン社製）

マイカ粉（MK）：A-31（板状フィラー、山口雲母工業社製）。

後述の表中のフィラーサイズは、500gの試料をとり、そのサイズに相当する粗さの篩を用いて分級した時、篩上に残留しなかったことを表す。

参考例3 25～250℃の温度範囲で固体から液体または気体に変化する物質（X）（篩にて42メッシュパスしたものを使用）

TA：トリアリルシアネート（アルドリッチ社製）融点156℃

EBA：エチレンビスステアリルアミド

”アーモワックス”（ライオン・アクゾー社製）融点140℃

BSL：ステアリン酸バリウム（日東化成工業社製）融点153℃

IRN：N，N'-ヘキサメチレンビス（3，5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシーヒドロシナマミド）

”イルガノックス”1098（日本チバガイギー社製）融点158℃

IRG：トリス（2，4-ジ-tert-ブチルフェニル）ホスファイト

”イルガフォス”168（日本チバガイギー社製）融点182℃

UVI：2，5-ビス（5'-tert-ブチルベンゾオキシザリル（2））チオフェン

”ユービテックス”OB（日本チバガイギー社製）融点200℃

PEP：ジ（2，4-ジ-tert-ブチルフェニル）ペンタエリスリトールジホスファイト

”MARK”PEP24G（アデカアーガス社製）融点170℃

HWE：モンタン酸エステルエステルワックス

リコワックス（クラリアントジャパン社製）融点78℃

参考例4 液状有機化合物

BPD：ポリオキシエチレンビスフェノールAラウリン酸エステル

”エキセパール”BP-DL（花王社製）

25℃における粘度280 mPa·s

MAR：テトラトリデシル-4, 4'-ブチリデンビス-(3-メチル-6-tert-ブチルフェノール)-ジホスファイト

”MARK” 260 (アデカ・アーガス社製)

25℃における粘度1100 mPa·s

DBP：ジブチルフタレート

DBP (大八化学社製) 25℃における粘度16 mPa·s

参考例5 リン酸エステル

PX：PX-200 (大八化学工業社製粉末状芳香族縮合リン酸エステル、CAS No. 139189-30-3) (篩にて42メッシュパスしたものを使用)

CR：CR-741 (大八化学工業社製液状芳香族縮合リン酸エステル、CAS No. 5945-33-5)

実施例1～12

参考例1の熱可塑性樹脂および参考例2に示したフィラー所定量をリボンブレンダーでブレンドし、原料フィーダー付き月島機械製ロータリー打錠機を用いて常温タブレット化により、7mm径×5mm長(最大値7mm、最小値5mm)のタブレットを得た。ついでプレス成形機を用いて表1に示す温度、プレス圧力5MPaで150mm×150mm×2mm厚の板状成形品を成形、あるいは射出成形により、以下の測定方法に従い、特性評価を行った。

比較例1

参考例1の熱可塑性樹脂および参考例2に示したフィラー所定量をリボンブレンダーでブレンドし、ストランド用4mm径×3ホールのダイヘッド付き2軸押出機PCM30 (池貝鉄鋼社製) で表1に示す温度、スクリュウ回転数100rpmで熔融混練可能な高充填組成物を作成し、上記実施例と同様の評価を行った。

比較例2～8

参考例1の熱可塑性樹脂および参考例2に示したフィラー所定量をリボンブレンダーでブレンドし、ストランド用4mm径×3ホールのダイヘッド付き2軸押出機PCM30 (池貝鉄鋼社製) で表1に示す樹脂温度で熔融混練検討を行ったところ、組成物が得られなかった。

実施例 13～29

参考例 1 の熱可塑性樹脂および参考例 2 に示したフィラー、および参考例 3 に示した 25～250℃の温度範囲で固体から液体または気体に変化する物質

(X) を所定量、リボンプレンダーでブレンドし、原料フィーダー付き月島機械製ロータリー打錠機を用いて常温タブレット化により、7 mm 径×5 mm 長（最大値 7 mm、最小値 5 mm）のタブレットを得た。ついでプレス成形機を用いて表 1 に示す温度、プレス圧力 5 MPa で 150 mm×150 mm×2 mm 厚の板状成形品を成形、あるいは射出成形により、以下の測定方法に従い、特性評価を行った。

参照例 1～9

参考例 3 に示した 25～250℃の温度範囲で固体から液体または気体に変化する物質 (X) を添加していない実施例 1～4、実施例 6～8、実施例 11、12 を参考例として示す。

実施例 30～41

参考例 1 の熱可塑性樹脂および参考例 2 に示したフィラー、および参考例 4 に示した液状有機化合物を所定量、リボンプレンダーでブレンドし、原料フィーダー付き月島機械製ロータリー打錠機を用いて常温タブレット化により、7 mm 径×5 mm 長（最大値 7 mm、最小値 5 mm）のタブレットを得た。ついでプレス成形機を用いて表 1 に示す温度、プレス圧力 5 MPa で 150 mm×150 mm×2 mm 厚の板状成形品を成形、あるいは射出成形により、以下の測定方法に従い、特性評価を行った。

参照例 10～18

参考例 4 に示した液状化合物を添加していない実施例 1～4、実施例 6～8、実施例 11、12 を参考例として示す。

実施例 42～51

参考例 1 の熱可塑性樹脂および参考例 2 に示したフィラー、および参考例 5 に示したリン酸エステルを所定量、リボンプレンダーでブレンドし、月島機械製ロータリー打錠機を用いて常温タブレット化により、7 mm 径×5 mm 長（最大値 7 mm、最小値 5 mm）のタブレットを得た。ついでプレス成形機を用いて表 1

に示す温度、プレス圧力5 MPaで150 mm×150 mm×2 mm厚の板状成形品を成形、あるいは射出成形により、以下の測定方法に従い、特性評価を行った。

参照例19～27

参考例4に示したリン酸エステルを添加していない実施例1～4、実施例6～8、実施例11、12を参考例として示す。

(1) 線膨張率 (寸法安定性)

寸法安定性について成形品の中央部を長さ10 mm×幅1 mm×厚み2 mmの角柱成形品を切り出し、TMA (セイコー電子社製) を用い、30℃～70℃ (5℃/分) で測定した。

(2) そり変形性

150 mm×150 mm×2 mm厚の板状成形品を120℃で2時間アニール処理を行い、4角のうち、一点を押さえ、対角側の浮き上がりによるソリ変形性について評価した。評価は、◎：1 mm未満、○：1～3 mm、×：3 mm超とした。

(3) 計量性－1 (計量時間)

住友SG75M-III射出成形機 (住友重機械工業) を用いて表1に示す樹脂温度でスクリュウ回転数は、負荷圧力律速でシリンダー内に60 mm計量した場合の計量時間を測定した (計量時間が短い方が、計量性が優れる)。

(4) 計量性－2 (時間バラツキ)

住友SG75M-III射出成形機 (住友重機械工業) を用いて表1に示す樹脂温度でスクリュウ回転数30 rpmで10ショット計量した時の計量時間を測定した。そのときの計量時間バラツキを次式により求めた。(計量時間バラツキ) = (10ショット中の計量時間の最大値) - (10ショット中の計量時間の最小値)

(5) 計量性－3 (負荷トルク)

住友SG75M-III射出成形機 (住友重機械工業) を用いて表1に示す樹脂温度でスクリュウ回転数30 rpmで計量した時の成形機スクリュウモーター負荷圧力を測定した (負荷圧力が低い方が、計量安定性が優れる)。

(6) 流動性

J85ELIII-UPS（日本製鋼所社製）成形機を用いて表1に示す樹脂温度および金型温度で $80 \times 80 \times 3$ mm厚の板状成形品が成形可能か評価を行った。評価結果は、○：末端部まで成形可能、×：末端部充填までにバリが発生し成形不可。結果を表1に示す。

表 1

	樹脂(容量%)	ファイバー (容量%)	ファイバー比重	ファイバーサイズ (μm)	樹脂温度 (℃)	金型温度 (℃)	寸法安定性 (×10 ⁻³ /℃)	ソリ変形性
実施例1	PPS-1(13)	CF(87)	1.76	<150	340	150	0.53	○
実施例2	PPS-2(13)	CF(87)	1.76	<150	340	150	0.60	○
実施例3	PA6(15)	CF(85)	1.76	<150	300	90	0.62	○
実施例4	LCP(16)	CF(84)	1.76	<150	350	130	0.46	○
実施例5	LCP(26)	KS(74)	2.23	<75	350	130	0.48	○
実施例6	PPS-1(17)	GF(83)	2.51	<200	340	150	0.90	○
実施例7	PPS-1(16)	KS(84)	2.23	<75	340	150	0.64	○
実施例8	PPS-1(19)	MK(81)	2.85	<50	340	150	1.05	○
実施例9	PPS-1(30)	KS(70)	2.23	<75	340	150	0.72	○
実施例10	PPS-1(25)	KS(75)	2.23	<75	340	150	0.70	○
実施例11	PBT(25)	KS(75)	2.23	<75	290	90	0.61	○
実施例12	PC(30)	KS(70)	2.23	<75	320	130	0.65	○
比較例1	PPS-1(43)	CF(57)	1.76	<150	340	150	1.2	×
比較例2	PPS-1(13)	CF(87)	1.76	<150	340	—	混練不可	
比較例3	PPS-1(17)	GF(83)	2.51	<200	340	—	混練不可	
比較例4	PPS-1(16)	KS(84)	2.23	<75	340	—	混練不可	
比較例5	PPS-1(19)	MK(81)	2.85	<50	340	—	混練不可	
比較例6	LCP(26)	KS(74)	2.23	<75	350	—	混練不可	
比較例7	PBT(25)	KS(75)	2.23	<75	290	—	混練不可	
比較例8	PC(30)	KS(70)	2.23	<75	320	—	混練不可	

表2

	熱可塑性樹脂 (容量%)	ファイラー (容量%)	物質(X) (重量部)	ファイラー 比重	ファイラーサイズ (μm)	樹脂温度 (°C)	金型温度 (°C)	寸法安定性 (×10 ⁻¹ /°C)	ソリ 変形性	計量性 (秒)
実施例13	PPS-1(13)	CF(87)	TA (6)	1.76	<150	340	150	0.47	◎	10
実施例14	PPS-2(13)	CF(87)	TA (6)	1.76	<150	340	150	0.53	◎	11
実施例15	PA6(15)	CF(85)	HWE(6)	1.76	<150	300	90	0.58	◎	12
実施例16	LCP(16)	CF(84)	HWE(5)	1.76	<150	350	130	0.43	◎	10
実施例17	LCP(26)	KS(74)	HWE(5)	2.23	<75	350	130	0.46	◎	10
実施例18	PPS-1(19)	MK(81)	TA (5)	2.85	<50	340	150	0.90	◎	13
実施例19	PPS-1(17)	GF(83)	TA (5)	2.51	<200	340	150	0.82	◎	13
実施例20	PPS-1(16)	KS(84)	EBA(7)	2.23	<75	340	150	0.58	◎	12
実施例21	PPS-1(13)	KS(87)	TA (6)	2.23	<75	340	150	0.57	◎	12
実施例22	PPS-1(13)	KS(87)	BSL(6)	2.23	<75	340	150	0.59	◎	14
実施例23	PPS-1(13)	KS(87)	IRN(8)	2.23	<75	340	150	0.57	◎	12
実施例24	PPS-1(13)	KS(87)	IRG(8)	2.23	<75	340	150	0.57	◎	12
実施例25	PPS-1(13)	KS(87)	UVI(7)	2.23	<75	340	150	0.58	◎	14
実施例26	PPS-1(13)	KS(87)	PEP(8)	2.23	<75	340	150	0.55	◎	10
実施例27	PPS-1(13)	KS(87)	HWE(5)	2.23	<75	340	150	0.61	◎	16
実施例28	PBT(25)	KS(75)	PEP(8)	2.23	<75	290	90	0.60	◎	12
実施例29	PC(30)	KS(70)	PEP(6)	2.23	<75	320	130	0.63	◎	12
参照例1	PPS-1(13)	CF(87)	-	1.76	<150	340	150	0.53	○	220
参照例2	PPS-2(13)	CF(87)	-	1.76	<150	340	150	0.60	○	240
参照例3	PA6(15)	CF(85)	-	1.76	<150	300	90	0.62	○	280
参照例4	LCP(16)	CF(84)	-	1.76	<150	350	130	0.46	○	180
参照例5	PPS-1(17)	GF(83)	-	2.51	<200	340	150	0.90	○	200
参照例6	PPS-1(16)	KS(84)	-	2.23	<75	340	150	0.64	○	260
参照例7	PPS-1(19)	MK(81)	-	2.85	<50	340	150	1.05	○	210
参照例8	PBT(25)	KS(75)	-	2.23	<75	290	90	0.61	○	240
参照例9	PC(30)	KS(70)	-	2.23	<75	320	130	0.65	○	240

物質(X)の添加量は、熱可塑性樹脂とファイラーの合計量100重量部に対する添加量(重量部)
熱可塑性樹脂とファイラーの添加量は、熱可塑性樹脂とファイラーの合計100容量%に対する添加量(容量%)

表3

	熱可塑性樹脂 (容量%)	ファイラー (容量%)	液状有機化合物 (重量部)	ファイラー 比重	フラーサイズ (μm)	樹脂温度 (°C)	金型温度 (°C)	寸法安定性 (×10 ⁻¹ /°C)	ソリ 変形性	計量時間 ハラツキ(秒)
実施例30	PPS-1(13)	CF(87)	BPD(6)	1.76	<150	340	150	0.49	◎	1.2
実施例31	PPS-2(13)	CF(87)	BPD(6)	1.76	<150	340	150	0.55	◎	2.0
実施例32	PA6(15)	CF(85)	BPD(6)	1.76	<150	300	90	0.59	◎	1.8
実施例33	LCP(16)	CF(84)	BPD(6)	1.76	<150	350	130	0.45	◎	1.6
実施例34	LCP(26)	KS(74)	BPD(5)	2.23	<75	350	130	0.46	◎	1.2
実施例35	PPS-1(19)	MK(81)	BPD(6)	2.85	<50	340	150	0.92	◎	2.3
実施例36	PPS-1(17)	GF(83)	BPD(6)	2.51	<200	340	150	0.83	◎	1.4
実施例37	PPS-1(16)	KS(84)	BPD(6)	2.23	<75	340	150	0.59	◎	1.3
実施例38	PPS-1(13)	KS(87)	MAR(7)	2.23	<75	340	150	0.61	◎	4.1
実施例39	PPS-1(13)	KS(87)	DBP(6)	2.23	<75	340	150	0.59	◎	1.8
実施例40	PBT(25)	KS(75)	MAR(8)	2.23	<75	290	90	0.60	◎	2.8
実施例41	PC(30)	KS(70)	MAR(6)	2.23	<75	320	130	0.62	◎	2.1
参照例10	PPS-1(13)	CF(87)	—	1.76	<150	340	150	0.53	○	25
参照例11	PPS-2(13)	CF(87)	—	1.76	<150	340	150	0.60	○	30
参照例12	PA6(15)	CF(85)	—	1.76	<150	300	90	0.62	○	24
参照例13	LCP(16)	CF(84)	—	1.76	<150	350	130	0.46	○	28
参照例14	PPS-1(17)	GF(83)	—	2.51	<200	340	150	0.90	○	18
参照例15	PPS-1(16)	KS(84)	—	2.23	<75	340	150	0.64	○	23
参照例16	PPS-1(19)	MK(81)	—	2.85	<50	340	150	1.05	○	20
参照例17	PBT(25)	KS(75)	—	2.23	<75	290	90	0.61	○	18
参照例18	PC(30)	KS(70)	—	2.23	<75	320	130	0.65	○	15

液状有機化合物の添加量は、熱可塑性樹脂とファイラーの合計量100重量部に対する添加量(重量部)
熱可塑性樹脂とファイラーの添加量は、熱可塑性樹脂とファイラーの合計100容量%に対する添加量(容量%)

表4

	熱可塑性樹脂 (容量%)	ファイラー (容量%)	リン酸エステル (重量部)	ファイラー 比重	ファイラーサイズ (μm)	樹脂温度 (°C)	金型温度 (°C)	寸法安定性 (×10 ⁻⁴ /°C)	ソリ 変形性	計量安定性 (MPa)	流動性
実施例42	PPS-1(13)	CF(87)	PX(5)	1.76	<150	340	150	0.45	◎	2.8	○
実施例43	PPS-2(13)	CF(87)	CR(7)	1.76	<150	340	150	0.50	◎	3.3	○
実施例44	PA6(15)	CF(85)	PX(5)	1.76	<150	300	90	0.55	◎	2.8	○
実施例45	LCP(16)	CF(84)	PX(3)	1.76	<150	350	130	0.40	◎	2.8	○
実施例46	LCP(28)	KS(74)	PX(3)	2.23	<75	350	130	0.42	◎	3.2	○
実施例47	PPS-1(17)	GF(83)	PX(5)	2.51	<200	340	150	0.82	◎	2.8	○
実施例48	PPS-1(16)	KS(84)	PX(5)	2.23	<75	340	150	0.55	◎	2.8	○
実施例49	PPS-1(19)	MK(81)	PX(5)	2.85	<50	340	150	0.80	◎	2.8	○
実施例50	PBT(25)	KS(75)	PX(6)	2.23	<75	290	90	0.58	◎	2.5	○
実施例51	PC(30)	KS(75)	PX(7)	2.23	<75	320	130	0.60	◎	2.8	○
参照例19	PPS-1(13)	CF(87)	-	1.76	<150	340	150	0.53	○	12.5	×
参照例20	PPS-2(13)	CF(87)	-	1.76	<150	340	150	0.60	○	13.0	×
参照例21	PA6(15)	CF(85)	-	1.76	<150	300	90	0.62	○	14.0	×
参照例22	LCP(16)	CF(84)	-	1.76	<150	350	130	0.46	○	12.5	×
参照例23	PPS-1(17)	GF(83)	-	2.51	<200	340	150	0.90	○	12.5	×
参照例24	PPS-1(16)	KS(84)	-	2.23	<75	340	150	0.64	○	14.0	×
参照例25	PPS-1(19)	MK(81)	-	2.85	<50	340	150	1.05	○	14.5	×
参照例26	PBT(25)	KS(75)	-	2.23	<75	290	90	0.61	○	14.5	×
参照例27	PC(30)	KS(75)	-	2.23	<75	320	130	0.65	○	14.5	×

リン酸エステルの添加量は、熱可塑性樹脂とファイラーの合計量100重量部に対する添加量(重量部)
熱可塑性樹脂とファイラーの添加量は、熱可塑性樹脂とファイラーの合計100容量%に対する添加量(容量%)

表 1 の結果から明らかなように本発明の製造方法によって得られた成形品はファイラー高充填可能となり、従来得られなかった領域の特性が得られることがわかる。また、さらに特徴を得るために添加剤を追添加することで、それぞれ、25～250℃の温度範囲で固体から液体または気体に変化する物質を添加することで計量時間の短縮、つまり成形サイクルの短縮が可能となり、液状有機化合物を添加することで計量時間のバラツキ低減、つまり、シリンダー充填量の安定性向上、リン酸エステルを添加することで計量時のスクリーモーター負荷の低減および流動性の向上効果を得ることが可能となる。また、溶融加工が可能であることから、軽量化目的に用いられる金属代替をはじめとする熱可塑性樹脂では、従来代替不可能であった新規用途への展開を図ることが可能となる。

産業上の利用可能性

本発明の錠剤は、溶融成形が可能であり、射出成形、押出成形、プレス成形、インジェクションプレス成形などの方法により、三次元成形品、シート、容器状物などに加工することができる。特に、生産性から、射出成形、射出圧縮成形（インジェクションプレス成形）などが好ましく用いられる。

かくして得られる成形品は、用いる充填剤の特徴を極限まで生かしつつ、かつ溶融成形可能であることを生かし、例えば、高放熱用途、金属代替用途、電磁波シールド用途、高精度部品（低寸法変化）、集電板等に有用であり、具体的には、パソコン、液晶プロジェクター、モバイル機器、携帯電話等の放熱部品、シールド部材、あるいは筐体、その他情報通信分野において電磁波などの遮蔽性を必要とする設置アンテナなどの部品、自動車部品、機械機構部品、屋外設置用機器あるいは建築部材で高寸法精度、電磁波シールド性、気体・液体等のバリアー性、熱および電気伝導性を必要とする用途、特に軽量化等で金属代替が熱望されている自動車部品用途、電気・電子部品用途、熱機器部品用途等に有用である。

請 求 の 範 囲

1. 熱可塑性樹脂とフィラーの組成比が両者の合計100容量％に対して熱可塑性樹脂1～40容量％、フィラー99～60容量％である錠剤。
2. 錠剤形状において縦、横、高さ、直径のいずれかの最大値が15mm未満、最小値が1mm以上であることを特徴とする請求の範囲第1項記載の錠剤。
3. 錠剤形状が円柱状、楕円柱状、球状、楕円球状、円錐台形状、鶏卵型形状、マセック型であることを特徴とする請求の範囲第1または2項記載の錠剤。
4. フィラーの比重が3.5以下である請求の範囲第1～3項いずれか記載の錠剤。
5. フィラーが繊維状、板状または鱗片状である請求の範囲第1～4項いずれか記載の錠剤。
6. さらに25～250℃の温度範囲で固体から液体または気体に変化する物質(X)を、熱可塑性樹脂とフィラーの合計量100重量部に対し0.1～30重量部配合してなる請求の範囲第1～5項いずれか記載の錠剤。
7. さらに25℃における粘度が1～5000mPa・sの液状有機化合物を、熱可塑性樹脂とフィラーの合計量100重量部に対し0.1～30重量部配合してなる請求の範囲第1～5項いずれか記載の錠剤。
8. さらにリン酸エステルを、熱可塑性樹脂とフィラーの合計量100重量部に対し0.1～30重量部配合してなる請求の範囲第1～5項いずれか記載の錠剤。
9. 熱可塑性樹脂粉末とフィラーを圧縮成形するか、または熱可塑性樹脂とフィラーとを熔融混練してなる組成物の粉末を圧縮成形して錠剤化することを特徴とする請求の範囲第1～8項いずれか記載の錠剤の製造方法。
10. 錠剤化を打錠機あるいはブリケットマシンを用いて行うことを特徴とする請求の範囲第9項記載の錠剤の製造方法。
11. 熱可塑性樹脂粉末の数平均粒子径が1000μm以下であることを特徴とする請求の範囲第9または10項記載の錠剤の製造方法。
12. 請求の範囲第1～8項いずれか記載の錠剤を熔融成形してなる成形品。
13. 請求の範囲第1～8項いずれか記載の錠剤を射出成形、射出圧縮成形して

なる自動車部品、電気・電子部品あるいは熱機器部品に用いられる成形品。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/04911

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.⁷ B29B9/12, B29B11/12, C08L101/00, C08K3/00, C08K5/521,
C08J3/12

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.⁷ B29B9/00-B29B11/16, C08L1/00-C08L101/16,
C08K3/00-C08K5/59, C08J3/12

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2002
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2002	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2002

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI/L (QUESTEL)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2001-19858 A (Mitsubishi Plastics, Inc.), 23 January, 2001 (23.01.01), Claims; Par. Nos. [0008], [0012] (Family: none)	1-6, 12 7-11, 13
X Y	JP 2001-89654 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 03 April, 2001 (03.04.01), Claims; Par. Nos. [0020], [0027] (Family: none)	1-7, 9, 11-12 8, 10, 13
X Y	JP 8-12746 A (Toray Industries, Inc.), 16 January, 1996 (16.01.96), Claims; Par. Nos. [0027], [0034] (Family: none)	1-8, 12 9-11, 13

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"I" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
16 July, 2002 (16.07.02)

Date of mailing of the international search report
06 August, 2002 (06.08.02)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/04911

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	WO 96/41836 A1 (Hoechst Celanese Corp.), 27 December, 1996 (27.12.96), Pages 5 to 6; what is claimed is: & JP 1-507693 A & EP 830427 A1 & US 5844036 A	1-5, 12-13 6-11
X Y	US 5571356 A (Hoechst AG.), 05 November, 1996 (05.11.96), Examples; we claim: & JP 6-240070 A & EP 614935 A1	1-5, 12-13 6-11
X Y	WO 97/42639 A1 (Hoechst Celanese Corp.), 13 November, 1997 (13.11.97), Page 10; we claim: & JP 2000-510639 A & EP 897582 A1 & US 5739193 A	1-5, 12-13 6-11
X Y	WO 97/20324 A1 (Hoechst Celanese Corp.), 05 June, 1997 (05.06.97), Page 8; we claim: & JP 2000-501549 A & EP 868732 A1	1-5, 12-13 6-11
X Y	JP 2002-166462 A (Iris Ohyama Inc.), 11 June, 2002 (11.06.02), Claims; Par. No. [0007] (Family: none)	1-5, 12 6-11, 13
X Y	JP 7-9479 A (Tsukamoto Shoji Kikai Kabushiki Kaisha), 13 January, 1995 (13.01.95), Claims; Par. No. [0009] (Family: none)	1-5, 9, 11-13 6-8, 10
X Y	JP 6-320535 A (Kawatetsu Mining Co., Ltd.), 22 November, 1994 (22.11.94), Claims; Par. Nos. [0009] to [0011], [0014] (Family: none)	1-5, 7, 12-13 6, 8-11
X Y	JP 6-226737 A (Toray Industries, Inc.), 16 August, 1994 (16.08.94), Claims; Par. Nos. [0012], [0015] (Family: none)	1-5, 12-13 6-11
X Y	JP 1-269521 A (Nikkiso Co., Ltd.), 27 October, 1989 (27.10.89), Claims; page 1, right column; page 2, lower left column (Family: none)	1-5, 12-13 6-11
X Y	WO 96/30434 A1 (GOULD, John), 03 October, 1996 (03.10.96), Page 9; Claims (Family: none)	1-5, 9-11 6-8, 12-13

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/04911

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 5-235211 A (Toshiba Corp.), 10 September, 1993 (10.09.93), Claims; Par. Nos. [0009], [0011] (Family: none)	1-12 13
X Y A	US 5211892 A (L'Oreal), 18 May, 1993 (18.05.93), What we claim is: & JP 5-70325 A & EP 467743 A1	1-5, 9-11 6-8 12-13
X Y	JP 6-49271 A (Yugen Kaisha Shiome Techno Plan), 22 February, 1994 (22.02.94), Claims; Par. Nos. [0005], [0007], [0008] (Family: none)	1-5, 9-11 6-8, 12-13
X Y	JP 2000-186214 A (Toshiba Chemical Corp.), 04 July, 2000 (04.07.00), Claims; Par. No. [0014] (Family: none)	1-5, 9-12 6-8, 11-13
X Y	JP 2001-55515 A (Tosoh Corp.), 27 February, 2001 (27.02.01), Claims; Par. Nos. [0021], [0026], [0038], [0041] (Family: none)	1-12 13
X Y	JP 51-59950 A (Sumitomo Nogataku Kabushiki Kaisha), 25 May, 1976 (25.05.76), Claims; page 4, upper left column (Family: none)	1-6, 12 7-11, 13
X	JP 50-101438 A (Ube Industries, Ltd.), 12 August, 1975 (12.08.75), Claims; page 2, lower left column (Family: none)	1-6, 12-13 7-11
X Y	JP 49-18148 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 18 February, 1974 (18.02.74), Claims (Family: none)	1-5, 12-13 6-11
X Y	GB 1508874 B (Montedison S.P.A.), 26 April, 1978 (26.04.78), What we claim is: & JP 51-19051 A	1-5, 12-13 6-11
X Y	JP 48-4558 A (Union Carbide Corp.), 20 January, 1973 (20.01.73), Claims; page 3, upper left column (Family: none)	1-5, 9-13 6-8
X Y	US 4302413 A (Rogers Corp.), 24 November, 1981 (24.11.81), What we claim is: & JP 55-67407 A	1-5, 9-13 6-8

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/04911

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2000-167827 A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.), 20 June, 2000 (20.06.00), Claims; Par. No. [0016] (Family: none)	1-13
Y	JP 3-13304 A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), 22 January, 1991 (22.01.91), Claims; page 3, lower left column to lower right Column (Family: none)	1-13
Y	JP 11-116950 A (Mitsui Chemicals, Ltd.), 27 April, 1999 (27.04.99), Claims; Par. Nos. [0037], [0043] (Family: none)	1-13
Y	JP 7-88838 A (Kaoru UMEYA), 04 April, 1995 (04.04.95), Claims; Par. Nos. [0015], [0018] (Family: none)	1-13
Y	JP 10-618 A (Toshiba Chemical Corp.), 06 January, 1998 (06.01.98), Claims; Par. No. [0009] (Family: none)	1-13
P,X P,A	JP 2001-214065 A (Kyowa Chemical Industry Co., Ltd.), 07 August, 2001 (07.08.01), Claims; Par. Nos. [0024], [0026], [0008] & EP 1153984 A1	1-5, 9-12 6-11, 13

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int Cl⁷ B29B9/12, B29B11/12, C08L101/00,
C08K3/00, C08K5/521, C08J3/12

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int Cl⁷ B29B9/00-B29B11/16, C08L1/00-C08L101/16,
C08K3/00-C08K/, C08J3/12,

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922年-1996年
日本国公開実用新案公報 1971年-2002年
日本国登録実用新案公報 1994年-2002年
日本国実用新案登録公報 1996年-2002年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L (QUESTEL)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	JP 2001-19858 A (三菱樹脂株式会社), 2001. 01. 23, [特許請求の範囲], [0008], [0012] (FAMILY: NONE)	1-6, 12 7-11, 13
X Y	JP 2001-89654 A (日立化成工業株式会社), 2001. 04. 03, [特許請求の範囲], [0020], [0027] (FAMILY: NONE)	1-7, 9, 11-12 8, 10, 13
X Y	JP 8-12746 A (東レ株式会社), 1996. 01. 16, [特許請求の範囲], [0027], [0034] (FAMILY: NONE)	1-8, 12 9-11, 13

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

16. 07. 02

国際調査報告の発送日

06.08.02

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)
郵便番号100-8915
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

安藤 達也 印

4F

9285

電話番号 03-3581-1101 内線 3430

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	WO 96/41836 A1 (HOECHST CELANESE CORPORATION) 1996. 12. 27, page. 5 - page. 6, What is claimed is: &JP 1-507693 A &EP 830427 A1 &US 5844036 A	1-5, 12-13 6-11
X Y	US 5571356 A (HOECHST AKTIENGESELLSCHAFT), 1996. 11. 05, EXAMPLES, We claim: &JP 6-240070 A &EP 614935 A1	1-5, 12-13 6-11
X Y	WO 97/42639 A1 (HOECHST CELANESE CORPORATION), 1997. 11. 13, page. 10, We claim: &JP 2000-510639 A &EP 897582 A1 &US 5739193 A	1-5, 12-13 6-11
X Y	WO 97/20324 A1 (HOECHST CELANESE CORPORATION), 1997. 06. 05, page. 8, We claim: &JP 2000-501549 A &EP 868732 A1	1-5, 12-13 6-11
X Y	JP 2002-166462 A (アイリスオーヤマ株式会社), 2002. 06. 11, [特許請求の範囲], [0007] (FAMILY : NONE)	1-5, 12 6-11, 13
X Y	JP 7-9479 A (塚本商事機械株式会社), 1995. 01. 13, [特許請求の範囲], [0009] (FAMILY : NONE)	1-5, 9, 11-13 6-8, 10
X Y	JP 6-320535 A (川鉄鉱業株式会社), 1994. 11. 22, [特許請求の範囲], [0009]-[0011], [0014] (FAMILY : NONE)	1-5, 7, 12-13 6, 8-11
X Y	JP 6-226737 A (東レ株式会社), 1994. 08. 16, [特許請求の範囲], [0012], [0015] (FAMILY : NONE)	1-5, 12-13 6-11
X Y	JP 1-269521 A (日機装株式会社), 1989. 10. 27, 特許請求の範囲, 1頁右欄, 2頁左下欄 (FAMILY : NONE)	1-5, 12-13 6-11
X Y	WO 96/30434 A1 (GOULD, JOHN), 1996. 10. 03, page. 9, CLAIMS (FAMILY : NONE)	1-5, 9-11 6-8, 12-13
X Y	JP 5-235211 A (株式会社東芝), 1993. 09. 10, [特許請求の範囲], [0009], [0011] (FAMILY : NONE)	1-12 13
X Y A	US 5211892 A (L'OREAL), 1993. 05. 18, What we claim is: &JP 5-70325 A &EP 467743 A1	1-5, 9-11 6-8 12-13

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	JP 6-49271 A (有限会社シオメテクノプラン), 1994. 02. 22, [特許請求の範囲], [0005], [0007], [0008] (FAMILY : NONE)	1-5, 9-11 6-8, 12-13
X Y	JP 2000-186214 A (東芝ケミカル株式会社), 2000. 07. 04, [特許請求の範囲], [0014] (FAMILY : NONE)	1-5, 9-12 6-8, 11-13
X Y	JP 2001-55515 A (東ソー株式会社), 2001. 02. 27, [特許請求の範囲], [0021], [0026], [0038], [0041] (FAMILY : NONE)	1-12 13
X Y	JP 51-59950 A (住友ノーガッタ株式会社), 1976. 05. 25, 特許請求の範囲, 4頁左上欄 (FAMILY : NONE)	1-6, 12 7-11, 13
X	JP 50-101438 A (宇部興産株式会社), 1975. 08. 12, 特許請求の範囲, 2頁左下欄 (FAMILY : NONE)	1-6, 12-13 7-11
X Y	JP 49-18148 A (住友化学工業株式会社), 1974. 02. 18, 特許請求の範囲 (FAMILY : NONE)	1-5, 12-13 6-11
X Y	GB 1508874 B (MONTEDISON S.P.A.), 1978. 04. 26, WHAT WE CLAIM IS: & JP 51-19051 A	1-5, 12-13 6-11
X Y	JP 48-4558 A (ユニオン カーバイド コーポレーション), 1973. 01. 20, 特許請求の範囲, 3頁左上欄 (FAMILY : NONE)	1-5, 9-13 6-8
X Y	US 4302413 A (ROGERS CORPORATION), 1981. 11. 24, WHAT WE CLAIM IS: & JP 55-67407 A	1-5, 9-13 6-8
Y	JP 2000-167827 A (旭化成工業株式会社), 2000. 06. 20, [特許請求の範囲], [0016] (FAMILY : NONE)	1-13
Y	JP 3-13304 A (出光興産株式会社), 1991. 01. 22, 特許請求の範囲, 3頁左下-右下欄, (FAMILY : NONE)	1-13
Y	JP 11-116950 A (三井化学株式会社), 1999. 04. 27, [特許請求の範囲], [0037], [0043] (FAMILY : NONE)	1-13
Y	JP 7-88838 A (梅屋 薫), 1995. 04. 04, [特許請求の範囲], [0015], [0018] (FAMILY : NONE)	1-13

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP 10-618 A (東芝ケミカル株式会社), 1998. 01. 06. [特許請求の範囲], [0009] (FAMILY : NONE)	1-13
P, X P, A	JP 2001-214065 A (協和化学工業株式会社), 2001. 08. 07, [特許請求の範囲], [0024], [0026], [0008] & EP 1153984 A1	1-5, 9-12 6-11, 13